

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2003年12月24日 (24.12.2003)

PCT

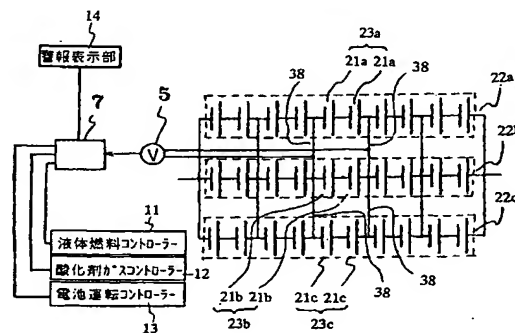
(10) 国際公開番号
WO 03/107466 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/04, 8/10, 8/24
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/07622
- (22) 国際出願日: 2003年6月16日 (16.06.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2002-176303 2002年6月17日 (17.06.2002) JP
特願2002-189362 2002年6月28日 (28.06.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社
ユアサコーポレーション (YUASA CORPORATION)
[JP/JP]; 〒569-1115 大阪府 高槻市 古曽部町二丁目
3番21号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 奥山 良一
(OKUYAMA, Ryoichi) [JP/JP]; 〒569-1126 大阪府
- (74) 代理人: 塩入 明, 外 (SHIOIRI, Akira et al.); 〒659-0093 兵庫県 芦屋市 船戸町4番1-409号室 Hyogo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,

[続葉有]

(54) Title: LIQUID-FUEL FUEL CELL, OPERATION MONITORING METHOD FOR MONITORING OPERATION THEREOF, AND OPERATION MONITORING DEVICE

(54) 発明の名称: 液体燃料形燃料電池とその運転を監視する運転監視方法および運転監視装置



14...ALARM INDICATION UNIT 12...OXIDIZER GAS CONTROLLER
11...LIQUID FUEL CONTROLLER 13...CELL OPERATION CONTROLLER

(57) Abstract: A liquid-fuel fuel cell comprising a unit cell that has a structure in which a negative electrode and a positive electrode are opposed with a polymer electrolyte having a proton conductivity interposed between them, a liquid fuel is supplied to the negative electrode, and air is supplied to the positive electrode, or the liquid-fuel cell comprising a cell stack where unit cells are stacked, an operation monitoring method for monitoring the operation, and an operation monitoring device are disclosed. The inventors has found out a degradation phenomenon of such a liquid-fuel fuel cell in which the exhausted fuel on the negative electrode side blackens and the cell performance irreversibly degrades if the output current is excessively increased, or if the supply of air or liquid fuel is insufficient. According to the invention, to prevent such degradation phenomenon, the liquid-fuel fuel cell has at least one of functions of increasing the supply of air or liquid fuel, issuing an alarm, decreasing the output current, and stopping the operation of the fuel cell when it is detected that the potential between the negative and positive electrodes monitored for at least one cell is below a predetermined negative potential.

[続葉有]

BEST AVAILABLE COPY

WO 03/107466 A1



AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

(57) 要約:

本発明は、プロトン導電性を有する高分子電解質を介して負極と正極とを向かい合うようにして設け、負極に液体燃料を、正極に空気を供給する構成を設けた単セルまたはこの単セルが複数積層されたセルスタックを有する、液体燃料形燃料電池とその運転を監視する運転監視方法および運転監視装置に関する。

発明者は、前記液体燃料形燃料電池について、出力電流を過大にしたり、空気や液体燃料の供給が不足したりすると、負極側の排燃料が黒変し、電池特性が不可逆に低下する劣化現象を見出した。

本発明は、前記劣化現象の発生を防止するために、前記液体燃料形燃料電池に、少なくとも一つのセルに対して、その負極と正極間の電位を監視し、その電位が所定の負電位以下であることを検出したときに、空気や液体燃料の供給を増加するか、警報を送出するか、出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う機能等を備えさせたものである。

明 細 書

液体燃料形燃料電池とその運転を監視する運転監視方法および運転監視装置

発明の属する技術分野

- 5 本発明は、液体燃料形燃料電池やそのシステム、燃料電池の運転監視方法、および運転監視装置に関する。

従来の技術

- 10 直接メタノール形燃料電池などの、液体燃料を用いた燃料電池が注目されている。液体燃料形燃料電池では、プロトン導電性を有する高分子電解質の両面に負極（燃料極）と正極（空気極）とを接合する。この接合体を、負極に液体燃料を、正極に酸化剤ガスを供給する、グラファイト板等のセパレータで挟み込んで、単セルとする。そしてセルを複数個積層してセルスタックとする。負極は白金-ルテニウム触媒を担持した炭素粉末を多孔性のカーボンペーパーに塗布することによって作製され、正極は白金触媒を担持した炭素粉末を同様のカーボンペーパーに塗布することによって作製される。液体燃料には、メタノール水溶液の他に、イソプロパノール水溶液、ジメチルエーテル-水系などが用いられる。メタノール水溶液は、濃度が例えば 3 w t % 程度である。
- 15

- 20 発明者は、出力電流を過大にしたり、空気や液体燃料の供給が不足したりすると、負極側の排燃料が黒変し、電池特性が不可逆に低下する現象を見出した。このような現象は、同様の電極や同様の高分子電解質を用いた燃料電池でも、水素燃料では生じず、液体燃料でのみ生じた。次に負極側の排燃料を分析するとルテニウムが検出され、これは、負極の白金-ルテニウム触媒から、ルテニウムが燃料中に溶出したものと考えられる。

- 25 発明者は、ルテニウムの溶出機構を以下のように推定した。燃料の供給や酸化剤の供給が不足し、あるいは過大な出力電流を取り出すと、正極と負極との電位が逆転することがある。例えば単セルを直列に接続すると、直列に接続された他

の単セルで大きな出力電流が流れるために、条件の悪いセルで電位の逆転が生じやすい。液体燃料形燃料電池では、燃料中にはメタノールやジメチルエーテルの酸化で生じた蟻酸や、プロパノールの酸化で生じたイソプロピオン酸などが微量に含まれ、排燃料は弱酸性の液体電解質とみなすことができる。そして液体電解質中で正極の電位が負極に対して反転し、例えば -600 mV 以下になると、負極のルテニウムが溶出する。当然のことながらこの現象は不可逆である。また単セルの出力電圧は数百 mV 程度で、セルを直列に接続したセルスタックとして使用することが前提なため、最も条件の悪いセルで転極が生じやすくなっている。なおこの明細書では、正極と負極との電位が逆転することを転極と呼び、転極が著しくなった際に負極からルテニウムが溶出する。正極には通常ルテニウムは含まれていないので、正極からのルテニウムの溶出が生じない。

発明の概要

この発明の課題は、転極による液体燃料形燃料電池の劣化を防止することにある。

この発明の液体燃料形燃料電池では、前記単セルまたは前記セルスタック中の少なくとも一つの単セルは、その負極と正極間の電位を監視する電位監視部を有し、この電位監視部は、前記電位が所定の負電位以下であることを検出したときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う機能を備えたことを特徴とする。なおこの明細書では、負極と正極間の電位は、正極が負極よりも高い電位である際に正とする。

このようにすると、燃料電池の転極を検出し、負極中のルテニウムが溶出するのを防止できる。転極の検出電位は、セル当たりで例えば $+200 \sim -500\text{ mV}$ 、好ましくは $0 \sim -500\text{ mV}$ 、特に好ましくは $-200 \sim -500\text{ mV}$ とする。セルを複数直列に接続したセル群の電位を監視する場合は、いずれかのセルが上記の検出電位に達し、他のセルは正常な電位を保っている場合に検出でき

るようにする。

この発明の液体燃料形燃料電池システムは、燃料電池セルが複数個直列接続されたセルスタックを少なくとも2台備え、かつ前記セルスタックは、少なくとも一個の単セルからなるセル群を複数個有しており、セルスタック間の、対応するセル群同士が並列接続されていることを特徴とする。このようにすると、条件の悪いセルで転極が生じるのを、並列に接続した他の単セルで防止できる。好ましくは、セル群を構成する少なくとも一つの単セルまたはセル群に対して、その負極と正極間の電位を電位監視部で監視する。

この発明の液体燃料形燃料電池の運転監視方法は、単セルまたは前記セルスタック中の少なくとも一つの単セルの、負極と正極間の電位を監視し、前記電位が所定の負電位以下であることが検出されたときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行うことを特徴とする。好ましくは、前記セルスタックを少なくとも2台設けると共に、前記セルスタックは、少なくとも一個の単セルからなるセル群を複数個有しており、セルスタック間の対応するセル群同士を並列接続する。

この発明の液体燃料形燃料電池の運転監視装置は、単セルまたは前記セルスタック中の少なくとも一つの単セルの、負極と正極間の電位を監視する電位監視部と、この電位監視部によって、前記電位が所定の負電位以下であることが検出されたときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う制御部とを備えたことを特徴とする。好ましくは、前記セルスタックを少なくとも2台設けると共に、前記セルスタックは、少なくとも一個の単セルからなるセル群を複数個有し、かつセルスタック間の、対応するセル群同士が並列接続されている。

図面の簡単な説明

図 1 は、単セルに -400 mV の逆電圧を印加した後と -600 mV の逆電圧を印加した後で電池特性がどのように変化するかを、出力電流と出力電圧との関係で示した図である。

図 2 は、実施例の直接メタノール形燃料電池の構成を示す図である。

5 図 3 は、実施例の直接メタノール形燃料電池の運転監視方法を示す図である。

図 4 は、実施例の直接メタノール形燃料電池の運転監視装置を示す図である。

図 5 は、実施例の直接メタノール形燃料電池システムの要部を示す図である。

図 6 は、他の実施例の直接メタノール形燃料電池システムの要部を示す図である。

10 図 7 は、実施例の直接メタノール形燃料電池システムの運転監視装置の一例を示す図である。

図 8 は、実施例の直接メタノール形燃料電池システムと従来の直接メタノール形燃料電池システムの放電特性を比較した図である。

図 9 は、実施例の直接メタノール形燃料電池システムを模式的に示す図である。

15 図 10 は、他の実施例の直接メタノール形燃料電池システムを模式的に示す図である。

実 施 例

以下に最初の実施例を説明する。

20 (評価試験 1)

評価試験に供した単セルでは、電解質としてプロトン導電性を有する高分子電解質膜としてのナフィオン（登録商標）117を、負極として白金-ルテニウム触媒を担持した炭素粉末（田中貴金属株式会社製）を多孔性のカーボンペーパーに塗布したものを、正極として白金触媒を担持した炭素粉末（田中貴金属株式会
25 社製）をカーボンペーパーに塗布したものをを用いた。これらをホットプレス法によって接合することによって膜電極接合体（MEA）とし、この膜電極接合体（MEA）をグラファイト製のセパレータで挟持した。この単セルの有効電極面積は

36 cm²であった。この単セルを90℃に加熱し、液体燃料としての濃度が3 wt %のメタノール水溶液を10ミリリットル/分で供給し、酸化剤ガスとしての空気を2リットル/分で供給し、出力電流を12 Aの定電流とした。そして空気の流量を2リットル/分にしてメタノール水溶液の流量を10ミリリットル/分
5 分から減少させるかまたは、メタノール水溶液の流量を10ミリリットル/分にして空気の流量を2リットル/分から減少させた。メタノール水溶液の流量が2ミリリットル/分以下または空気の流量が0.6リットル/分以下になると転極が発生し、負極での反応生成物が黒く変色した。この反応生成物を分析したところ、通常の反応生成物中にはほとんど含有されていないルテニウムが多量に含有
10 されていることがわかった。そしてこれによって反応生成物が黒く変色していることがわかった。このことから、メタノール水溶液または空気の供給に不足が生じていると思える場合に、このような現象が生じることがわかった。

(評価試験2)

15 評価試験1で用いたものと同じ単セルを、90℃に加熱し、液体燃料としての濃度が3 wt %のメタノール水溶液を2ミリリットル/分で供給し、酸化剤ガスとしての空気を0.6リットル/分で供給し、出力電流を0 Aから定電流で増加させた。それが12 A以上になると転極が発生し、負極の反応生成物が黒く変色した。この反応生成物を分析したところ、同様にルテニウムが多量に含有されて
20 いることが分かった。

評価試験1、2において、反応生成物が黒く変色した時の単セルの、負極/正極間の電位を調査したところ、いずれも転極が生じて、0.5~0.6 Vの逆電位が生じていることがわかった。引き続いて以下の評価試験3を行った。

25 (評価試験3)

評価試験1で用いたものと同じ単セルを90℃に加熱し、液体燃料として濃度が3 wt %のメタノール水溶液を2ミリリットル/分で供給し、酸化剤ガスとし

での空気を0.6リットル／分で供給した。この状態で、負極／正極間の電位が−200mV、−400mV、−600mV、−800mVとなるように、逆電圧を30分間ずつ連続して印加し、その負極側の反応生成物に変色するかどうかと反応生成物中にルテニウムが含有されているかどうかを調査分析した。結果を表1に示す。

表 1

負極／正極間の電位 (mV)	反応生成物の変色	反応生成物中のルテニウム
-200	変色なし	検出されず
-400	変色なし	検出されず
-600	黒く変色	検出された
-800	黒く変色	検出された

表1から、逆電圧が−200mV、−400mVであれば、負極側の反応生成物の変色も反応生成物中のルテニウムの含有も認められなかった。これに対し、逆電圧が−600mV、−800mVであれば、負極側の反応生成物の変色も反応生成物中のルテニウムの含有も認められることがわかった。

(評価試験4)

評価試験1で用いたものと同じ単セルを、90℃に加熱し、液体燃料としての濃度が3wt%のメタノール水溶液を8ミリリットル／分で供給し、酸化剤ガスとしての空気を3リットル／分で供給した。この状態で、負極に対して正極の電位が−400mVの逆電圧を印加した後と、−600mVの逆電圧を印加した後で、電池特性がどのように変化するかを、出力電流と出力電圧との関係を調査することによって分析した。結果を図1に示す。

−400 mVの逆電圧を印加した後は、負極側の反応生成物の変色も反応生成物中のルテニウムの含有も認められなかっただけでなく、電池特性の変化も認められなかった。これに対して、−600 mVの逆電圧を印加した後は、負極側の反応生成物の変色も反応生成物中のルテニウムの含有も認められ、電池特性の顕著な低下が認められた。

すなわち、直接メタノール形燃料電池では、メタノール水溶液や空気の供給不足またはメタノール水溶液や空気の供給に対して出力電流が過大になると、単セルに転極が生じて、負極に対する正極の電位が逆転する。その電位が−600 mVになると、負極側から排出される蟻酸のためメタノール水溶液が弱酸性に保持されているため、それが電解液として機能する。その結果、負極の触媒の成分であるルテニウムが電気化学的に溶解する。そして、一旦、このようにルテニウムが電気化学的に溶出してしまうと、負極の触媒機能が低下し、それによって電池特性の低下が生じる。単セルが多数直列に接続されたセルスタックの場合、特定の単セルにこのような現象が発生すると、セルスタック全体の特性低下の原因になる。ところで水素燃料の固体高分子形燃料電池では、負極では反応生成物は生じず、わずかに高純度な水が正極側から拡散するのみである。このため、このような転極を生じて、ルテニウムが電気化学的に溶出することもない。このように転極によるルテニウムの溶出は、液体燃料形燃料電池の特有の問題である。

すなわち、評価試験1〜4の結果より、本発明の液体燃料形燃料電池の、図2に示す一つの単セル1からなるものに、その負極／正極間の電位を監視する電位監視部2を設ける。そしてこの電位監視部2によって、電位がたとえば−400 mVといった所定の負電位を検出したときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う。また本発明に係る液体燃料形燃料電池の運転監視方法では、図3にそのフロー図を示したように、単セルの負極／正極の電位を監視する。そして電位が、たとえば−400 mV以下といった所定の負電位を検出したときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送

出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う。また本発明に係る液体燃料形燃料電池の運転監視装置 10 では、図 4 に示したように、単セルの、負極／正極間の電位を監視する電位監視部 2 を設ける。そしてこの電位監視部 2 によって、電位が、たとえば -400 mV といった所定の負電位を検出したときに、液体燃料コントローラー 11 によって液体燃料の供給を増加するか、酸化剤ガスコントローラー 12 によって酸化剤ガスの供給を増加するか、警報表示部 14 によって警報を送出するか、電池運転コントローラー 13 によって電池の出力電流の低減または電池の運転の停止をするか、の少なくとも一つを行う制御部 3 とを設ける。これにより、負極の触媒中のルテニウムの電気化学的な溶出が防止でき、液体燃料形燃料電池を、長期間、安定して運転できる。なお、図 2～図 4 は、一つの単セルの電位を監視しているが、複数個の単セルからなるセルスタック中の、少なくとも一つの単セルの電位を監視すればよい。

実施例では、単セルまたはセルスタック中の、少なくとも一つの単セルの、負極／正極間の電位を監視するようにした。しかしセルスタックを構成する複数個の単セルを、たとえば 2～6 セルごとの複数のブロックに分け、各ブロックについて、負極／正極間の電位を監視し、そのブロックの電位から、特定の単セルに逆電圧が発生していることを検出するようにしてもよい。この場合、各ブロック中の単セルは、その数が少ないほど精度は向上するものの、電位監視部の数が多くなるため、2～6 セルごとの複数のブロック、好ましくは、3～5 セルごとの複数のブロックにすることが望ましい。

また本発明の液体燃料形燃料電池では、電位監視部に代えて、単セル、セルスタックの少なくとも一つの単セルまたは複数個の単セルからなるブロックに、転極による逆電圧が印加されないように、例えばダイオード等の電子回路を設けてもよい。

最適実施例

本発明の直接メタノール形燃料電池システムを構成するセルおよびセルスタックのセルでは、プロトン導電性を有する高分子電解質膜としてのナフィオン 117（商品名、「ナフィオン」はデュポン社の登録商標）を電解質に用い、白金-ルテニウム触媒を担持した炭素粉末を多孔性のカーボンペーパーに塗布したものを負極に用い、白金触媒を担持した炭素粉末をカーボンペーパーに塗布したものを正極に用いた。そしてこれらを温度 130℃、圧力 980 N でホットプレス法によって接合して膜電極接合体（MEA）とし、この膜電極接合体（MEA）をグラファイト製のセパレータで挟持した。このセルの有効電極面積は 36 cm² で、セルスタックは、このセルを 10 セル積層して直列接続した。

セルスタックを 6 台準備し、3 台のセルスタックにより、図 5 に示したような、本発明の直接メタノール形燃料電池システムを構成した。このシステムでは、2 個ずつの単セルからなる 5 個のセル群によってセルスタック 22a, 22b, 22c を構成した。各セルスタック 22a, 22b, 22c 間の、対応するセル群 23a, 23b, 23c（同じ位置にあるセルからなるセル群）同士を接続線 38 によって接続して並列接続した。

図 5 に示したシステムでは、特定の単セルが劣化し、セルスタックを構成する各セルに対してメタノール水溶液や空気の供給が不均一になり、特定の単セルにメタノール水溶液や空気の供給が十分でなくなっても、セルスタック間の、対応するセル群 23a, 23b, 23c 同士が接続線 38 によって接続されているので、特定の単セルの出力電圧が極端に低下することはない。

これに対し、図 6 に示したように、1 台のセルスタック 22b 中の一つのセル群 23b（2 個の単セル 21b が直列接続されてなる）に電位監視部 5 を設け、この電位監視部 5 により、セル群 23b の負極／正極間の電位を監視する。そして電位が所定の電位以下であることを検出したときに、そのセル群 23b を含むセルスタック 22b またはシステムに対する、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、システムの出力量を低減するか、システムの運転を停止するか、の少なくとも一つを行う。電位監視部 5 は、セル群 23b

中の単セル 2 1 b ごとに、その負極／正極間の電位を監視するようにしてもよい。また監視部 5 は、セルスタック 2 2 b 中のセル群 2 3 b 以外の、少なくとも一個のセル群に設けてもよい。電位監視部 5 によって単セル 2 1 b の負極／正極間の電位を監視する場合は、その設定電圧を -0.5 V 以上の任意の値に定めることができる。またセル群 2 3 b の負極／正極間の電位を監視する場合は、セル群中のいずれの単セルの電圧も -0.5 V 以下にならないように、セル群中のセル数に応じて定める。なお、セル群 2 3 b の負極／正極間の電位を監視する場合は、健全な複数のセル中に一つだけ劣化したセルがあると、監視する電位の変化が小さくなって劣化したセルの検出が困難になるため、セル群中のセル数は大きくしない方が好ましい。

図 6 のシステムを 90°C に加熱し、セル当り液体燃料として、濃度が 3 w t % のメタノール水溶液を 8 ミリリットル／分で供給し、酸化剤ガスとして、空気を 1 リットル／分で供給して運転した。セル群 2 3 b にはメタノール供給を減少させて、メタノール水溶液をセル当り 1 ミリリットル／分で供給した。比較のための従来例として、セルスタックの 1 つの単セルにメタノール水溶液をセル当り 1 ミリリットル／分で供給し、他の単セルにはメタノール水溶液を 8 ミリリットル／分で供給した。空気供給はどの単セルも 1 リットル／分とした。メタノール供給を減少させた単セルの放電電圧を電位監視部 5 で測定しながら、電流密度を増加させた。結果を図 8 に示す。

図 8 に示すように、図 5 のシステムから接続線 3 8 を除いた従来のシステムでは、放電電流密度が 300 mA/cm^2 付近になると放電電圧が低下し始め、放電電流密度が 320 mA/cm^2 で放電電圧が -0.6 V を示して大きな転極の発生が認められた。図 6 (本発明) のシステムでは、放電電流密度が 300 mA/cm^2 付近になると放電電圧が低下し始めたものの、放電電流密度が 360 mA/cm^2 付近になるまで、転極の発生は認められなかった。また従来のシステムでは、放電電流密度が 320 mA/cm^2 での運転を約 30 分間継続したところ、負極の反応生成物が黒く変色して、電池特性の低下が認められるようになった。

これに対し、図 6 のシステムでは、放電電流密度が 320 mA/cm^2 では転極の発生が認められず、その電流密度での運転を約 30 分間継続しても、負極の反応生成物の変色はなく、セルスタックの特性の低下も認められなかった。セルスタック 22 a, 22 b, 22 c 間の、対応するセル群 23 a, 23 b, 23 c 同士を
5 接続線 38 によって接続している図 6 のシステムでは、接続線 38 によって対応するセル群 23 a, 23 b, 23 c 間で放電電流を分担させることができる。これに対し、従来のシステムでは、メタノール水溶液を供給する流量を小さくしたセル 21 b にも、他の単セルと同じ電流が流れ、その単セル 21 b の放電電圧が極端に低下する。また放電電圧が所定値以下であることが検出されたときに、その
10 セルスタックまたはシステムに対してメタノール水溶液の供給を増加するようにした図 7 のシステム（後述）では、放電電流密度を 400 mA/cm^2 にしても（この時、燃料供給を 12 ミリリットル／分に増加）転極は発生しなかった。ここでは、セル当りの放電電圧を、セル群 23 b 中の一つの単セルで転極が発生すると検出できるように、0.2 V とした。なお、従来例で生成した黒く変色した
15 反応生成物を分析すると、通常の反応生成物中にはほとんど含有されていないルテニウムが多量に検出された。

図 9、図 10 は、実施例の直接メタノール形燃料電池システムを模式的に示している。このシステムは、図 9 (a)、図 10 (a) に示したように、一枚の固体電解質膜 24 の一部にプロトン導電性のあるプロトン導電部 26 を形成する。

20 プロトン導電部 26 の表裏に負極 30 と正極 32 とを形成して、複数の単セル 21 を固体電解質膜 24 上に隣接して形成し、各セル 21 間に樹脂等を含浸させてプロトン導電性のない絶縁部 28 を形成する。絶縁部 28 に接続部 34 を形成し、この接続部 34 によって単セルを電氣的に接続する。このようなシート方式の直列接続により、複数のセルからなる MEA が得られ、この MEA をセルスタック
25 22 a, 22 b, 22 c とする。負極 30 は、例えば C（カーボン）-Pt-Ru の導電性触媒にナフィオン（登録商標）と PTFE（ポリテトラフルオロエチレン）を混合したものとした。ここで Pt と Ru の比を 1 : 1.5（モル比）、（貴金

属＋カーボン)に対する貴金属の割合を約50wt%、触媒：PTFE：ナフィオンを重量比で55：17：28とした。そして貴金属の含有量は、単位電極表面積当たり1mg/cm²とした。これ以外にカーボンペーパーなどのバッキング層を液体燃料流路側に設ける。正極32では、C(カーボン)－Pt－Ruの導電性触媒に代えて、好ましくはC(カーボン)－Ptの導電性触媒を用い、貴金属をPt100%、(貴金属＋カーボン)に対する貴金属の割合を約50wt%、触媒：PTFE：ナフィオンを重量比で66：13：21とした。そして貴金属の含有量は、単位電極表面積当たり1mg/cm²とした。他の点は負極30と同様とし、同様にカーボンペーパーなどのバッキング層を設けることが好ましい。

図9(a)、図10(a)に示したものでは、プロトン導電部26の厚さを180μm、負極30と正極32の厚さをそれぞれ200μmとした。負極30と正極32には、導電性触媒からなる、厚さが100～500μmの触媒層を設けることができる。

図9(a)に示した直列接続では、負極30とその左側の隣接した正極32との間に、金属板や金属フィルム、カーボンペーパー、導電性高分子などの電子伝導性のある材料からなる接続部34を設ける。そして負極30と正極32との配列方向に関して、所定の向きにある負極30と正極32とを電子的に接続する。図10(a)に示した直列接続では、固体電解質膜24の一方の同一表面上に負極30を、他方の同一表面上に正極32を形成し、絶縁部28を貫通させて接続部34を形成する。この接続部34によって固体電解質膜24(プロトン導電部26)の表裏両面の負極30と正極32とを電子的に接続する。また、36、37はセルスタック22a～cの出力端子であり、この出力端子36、37の同極性同士を互いに接続することによって各セルスタック22a～cを並列に接続してシステムを構成する。本発明のシステムでは、図9(a)、図10(a)およびそれぞれの接続図である図9(b)、図10(b)に示したように、各セルスタック22a～cの個々の単セル21によってセル群23を構成するとともに、各セルスタック22a～c間の、対応するセル群23同士を接続線38によって

並列に接続する。なお、接続線 3 8 は、導電性のネットやカーボン板を介在させることによって実現できる。

本発明の運転監視方法や運転監視装置では、図 7 に示したように、2 個の単セル 2 1 b が直列接続されたセル群 2 3 b の、負極／正極間の電位を電位監視部 5
5 で監視する。電位が所定の電位以下であることが検出されたときに、制御部 7 は、液体燃料コントローラー 1 1 を介して、セル群 2 3 b が含まれるセルスタック 2 2 b またはシステムに対する液体燃料の供給を増加させる。あるいは酸化剤ガス
コントローラー 1 2 を介して、セルスタック 2 2 b またはシステムに対する酸化
剤ガスの供給が増加され、警報表示部 1 4 によって警報が送出され、または電池
10 運転コントローラー 1 3 によって、システムの出力量が低減されまたはシステムが運転停止される。電位監視部 5 は、1 個の単セル 2 1 b の、負極／正極間の電位を監視してもよく、複数のセル群 2 3 b での負極／正極間の電位を監視してもよい。

請求の範囲

1. プロトン導電性を有する高分子電解質からなる電解質を介して負極と正極とを向かい合うようにして設け、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けた単セルまたはこの単セルが複数個積層されたセルスタックを有する液体燃料形燃料電池において、前記単セルまたは前記セルスタック中の少なくとも一つの単セルに対して、その負極と正極間の電位を監視する電位監視部を設け、この電位監視部は、前記電位が所定の負電位以下であることを検出したときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う機能を備えたことを特徴とする液体燃料形燃料電池。
2. プロトン導電性を有する高分子電解質からなる電解質を介して負極と正極とを向かい合うようにして設け、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けた単セルが複数個直列接続されたセルスタックを少なくとも2台備え、かつ前記セルスタックは、少なくとも一個の単セルからなるセル群を複数個有しており、セルスタック間の、対応するセル群同士が並列接続されていることを特徴とする液体燃料形燃料電池システム。
3. セル群を構成する少なくとも一つの単セルまたはセル群は、その負極と正極間の電位を監視する電位監視部を有し、この電位監視部は、前記電位が所定の電位以下であることを検出したときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つの機能を備えたことを特徴とする、請求の範囲第2項の液体燃料形燃料電池システム。
4. プロトン導電性を有する高分子電解質からなる電解質を介して負極と正極と

を向かい合うようにして設け、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けた単セルまたはこの単セルが複数個積層されたセルスタックを有する液体燃料形燃料電池の運転を監視する液体燃料形燃料電池の運転監視方法において、単セルまたは前記セルスタック中の少なくとも一つの単セルの、負極と正極間の電位を監視し、前記電位が所定の負電位以下であることが検出されたときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行うことを特徴とする液体燃料形燃料電池の運転監視方法。

5 10 5. 前記セルスタックを少なくとも2台設けると共に、前記セルスタックは、少なくとも一個の単セルからなるセル群を複数個有しており、セルスタック間の、対応するセル群同士を並列接続することを特徴とする、請求の範囲第4項の液体燃料形燃料電池システムの運転監視方法。

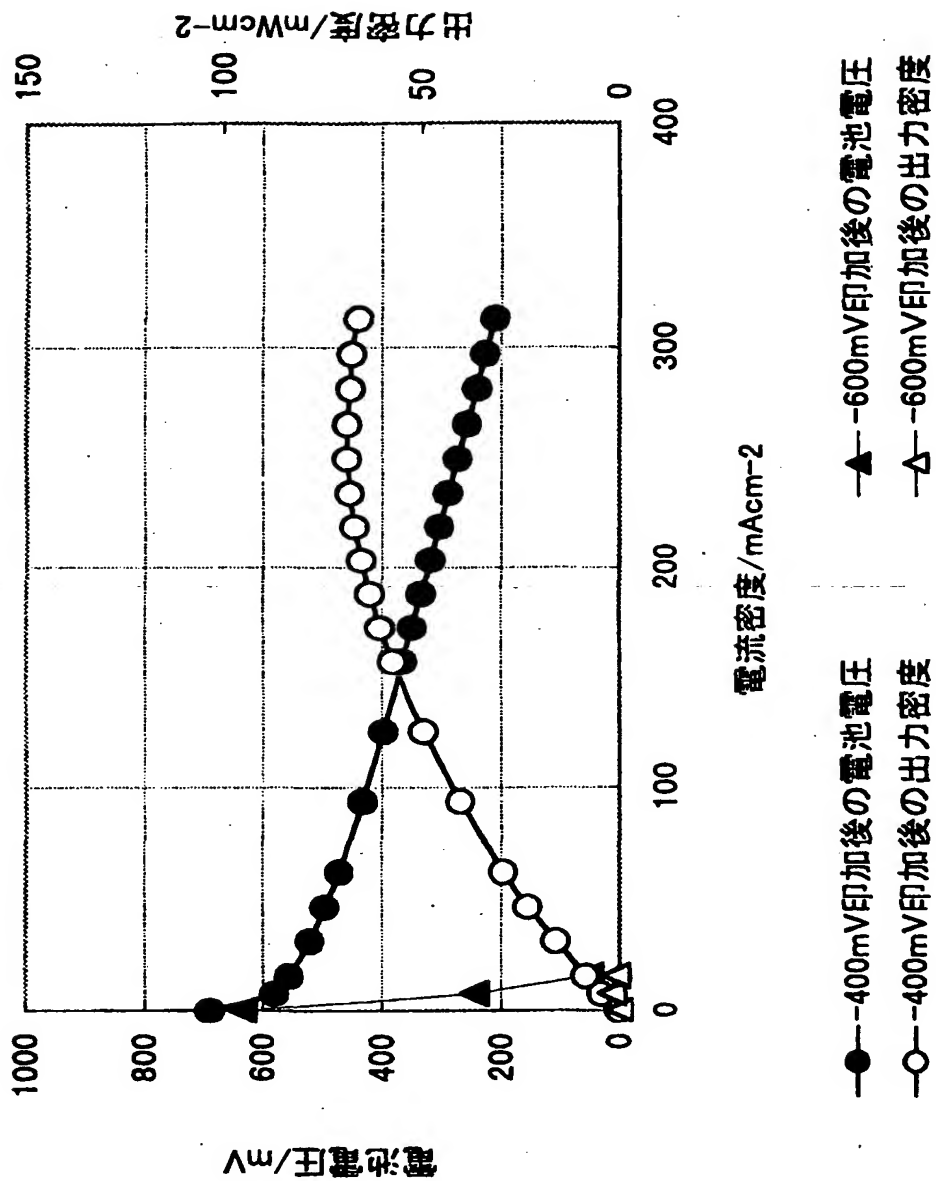
15 6. プロトン導電性を有する高分子電解質からなる電解質を介して負極と正極とを向かい合うようにして設け、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けた単セルまたはこの単セルが複数個積層されたセルスタックを有する液体燃料形燃料電池の運転を監視する液体燃料形燃料電池の運転監視装置において、前記装置は、単セルまたは前記セルスタック中の少なくとも一つの
20 単セルの、負極と正極間の電位を監視する電位監視部と、この電位監視部によって、前記電位が所定の負電位以下であることが検出されたときに、液体燃料または酸化剤ガスの供給を増加するか、警報を送出するか、電池の出力電流を低減するか、電池の運転を停止するか、の少なくとも一つを行う制御部とを備えたことを特徴とする液体燃料形燃料電池の運転監視装置。

25 7. 前記セルスタックを少なくとも2台設けると共に、前記セルスタックは、少なくとも一個の単セルからなるセル群を複数個有し、かつセルスタック間の、対

応するセル群同士が並列接続されていることを特徴とする、請求の範囲第 6 項の液体燃料形燃料電池システムの運転監視装置。

1 / 7

図 1



2 / 7

図 2

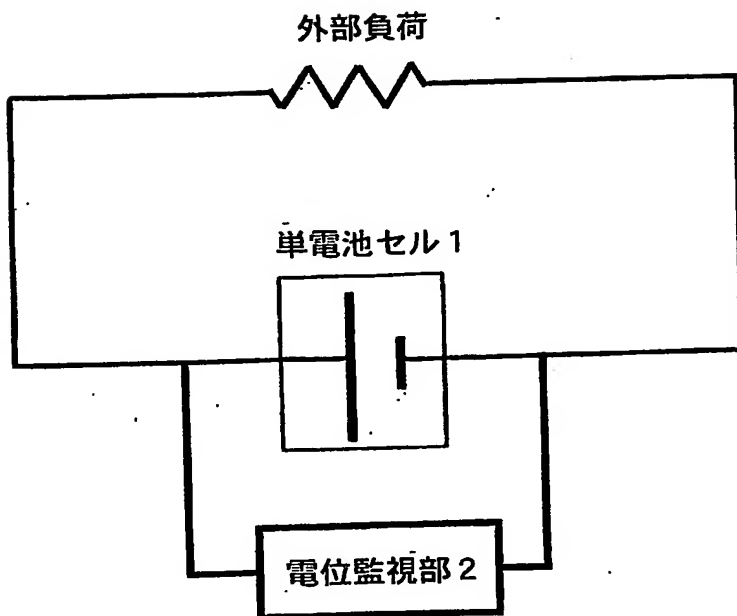
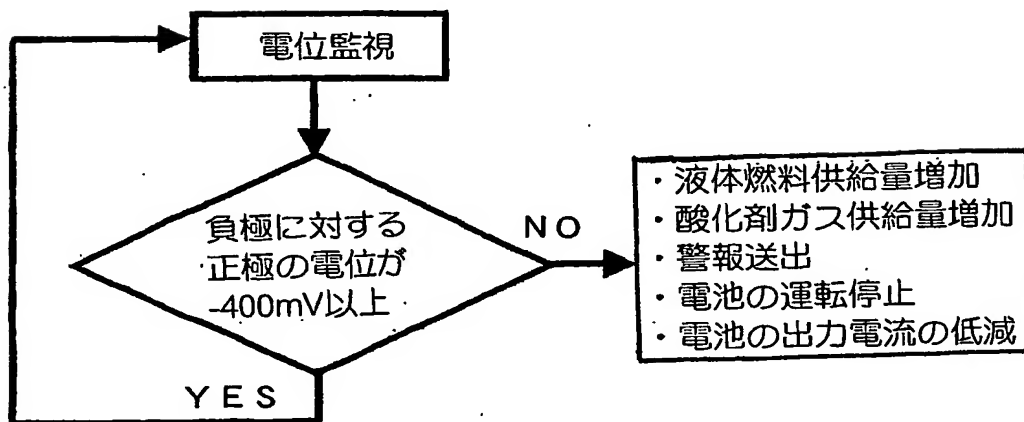


図 3



3 / 7

図 4

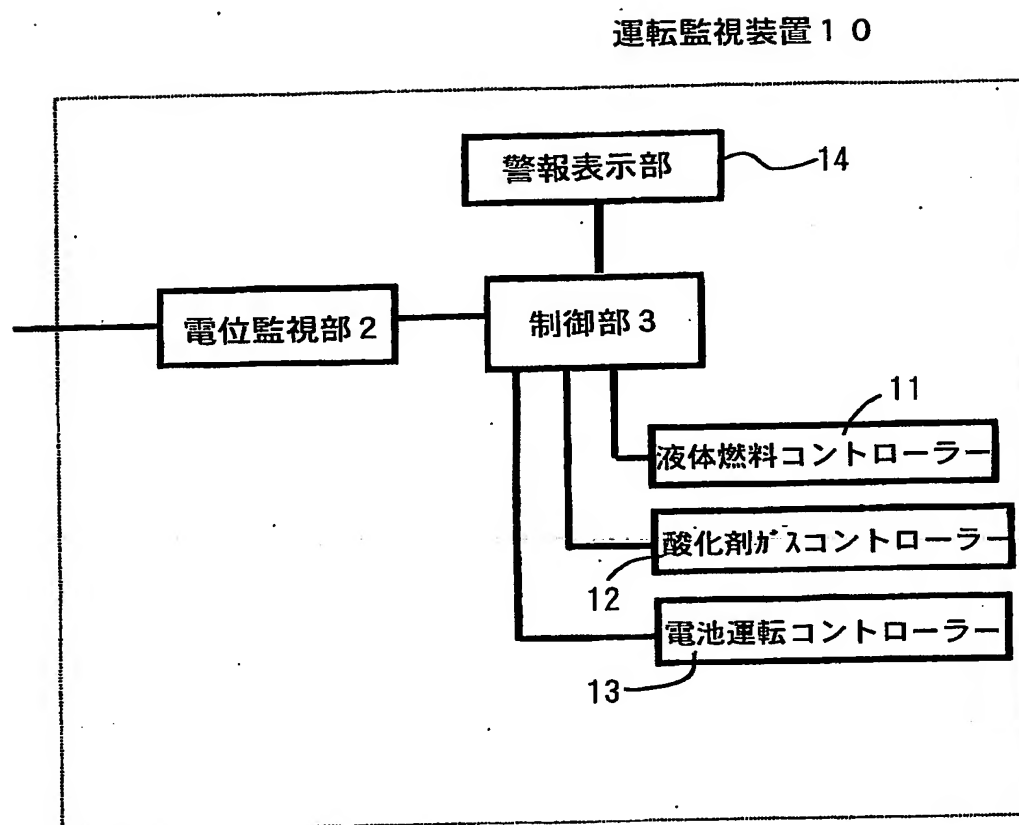


図 5

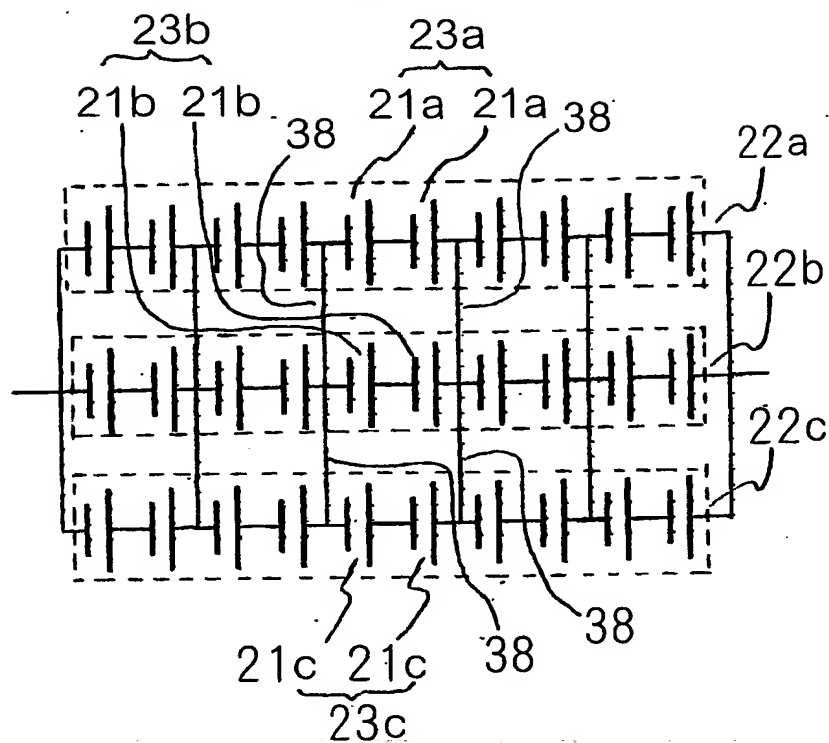
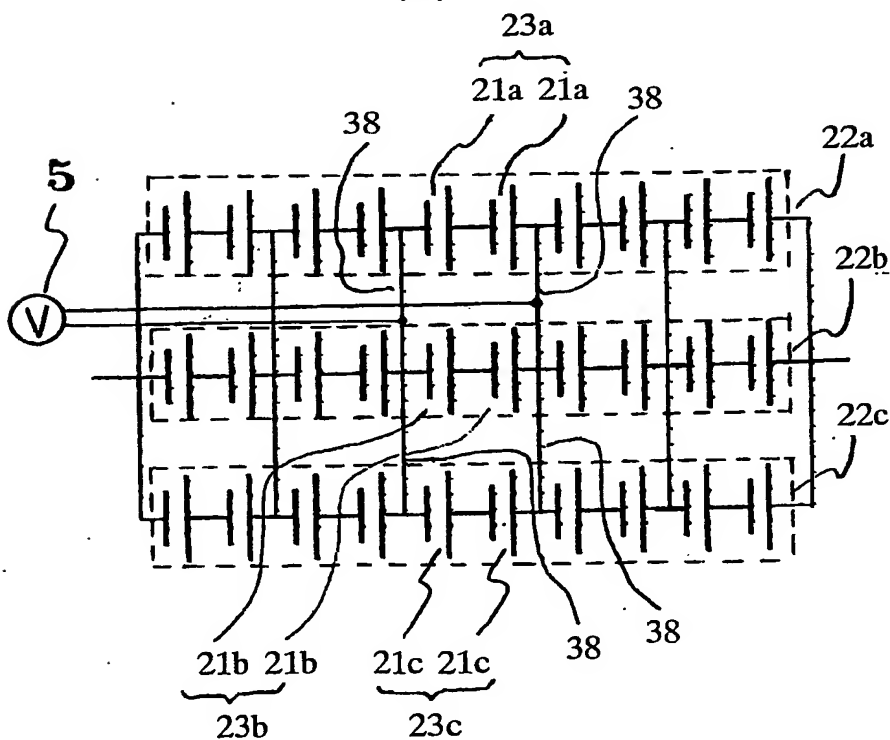


図 6



5 / 7

図 7

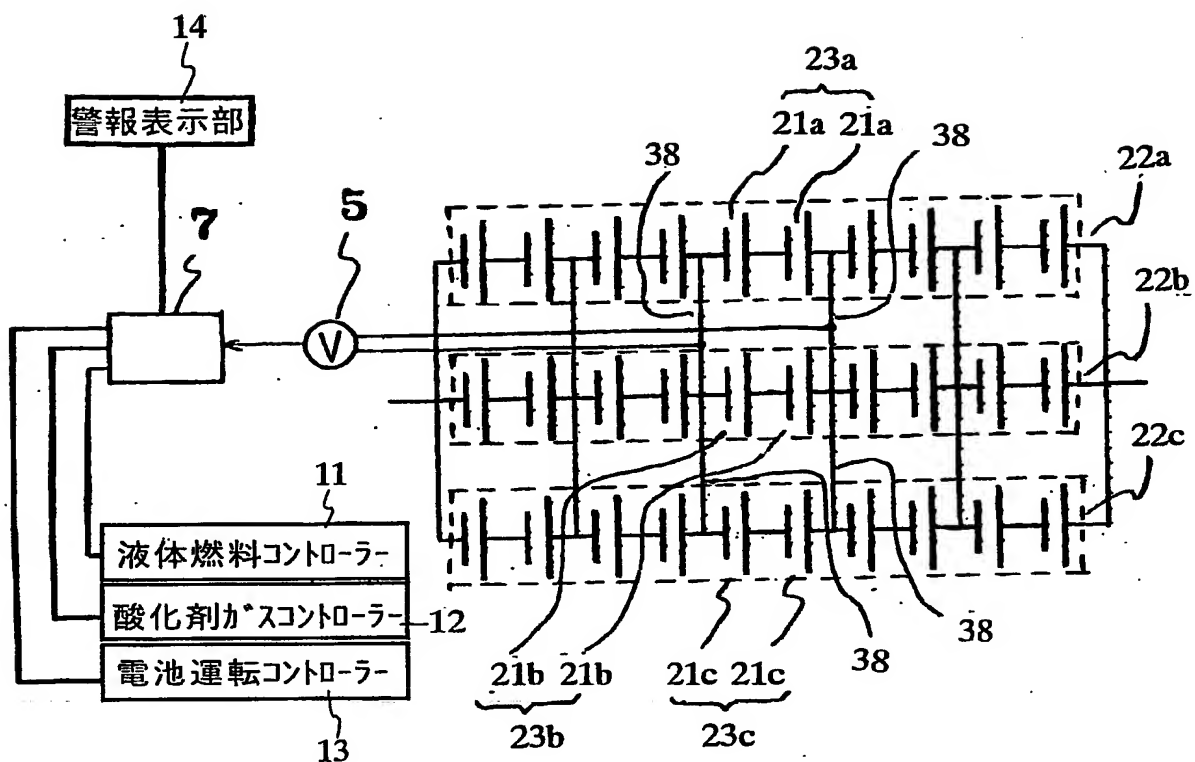
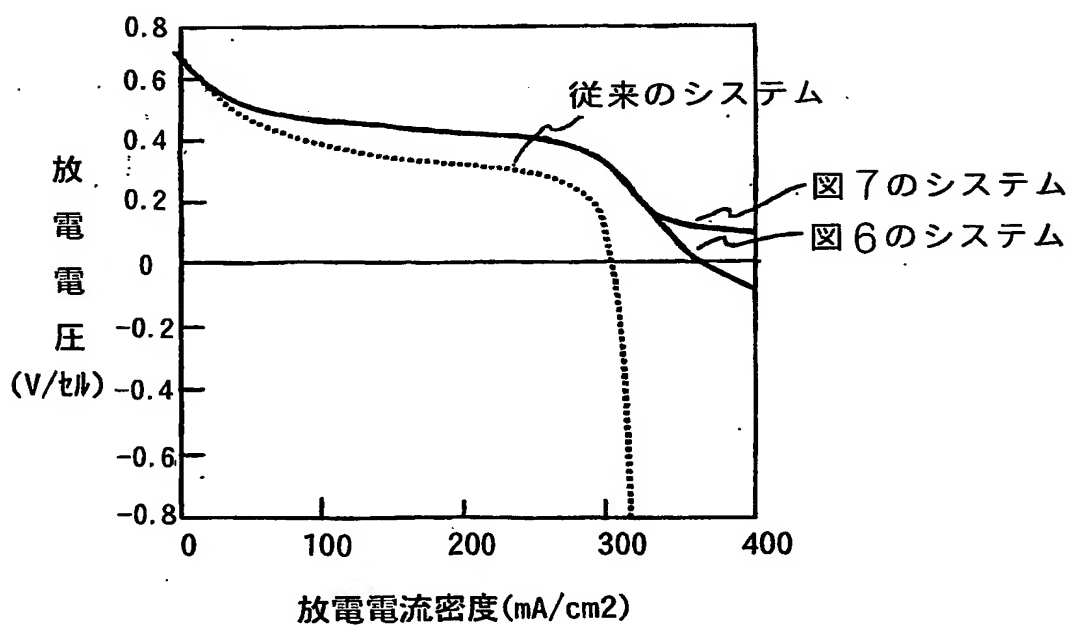
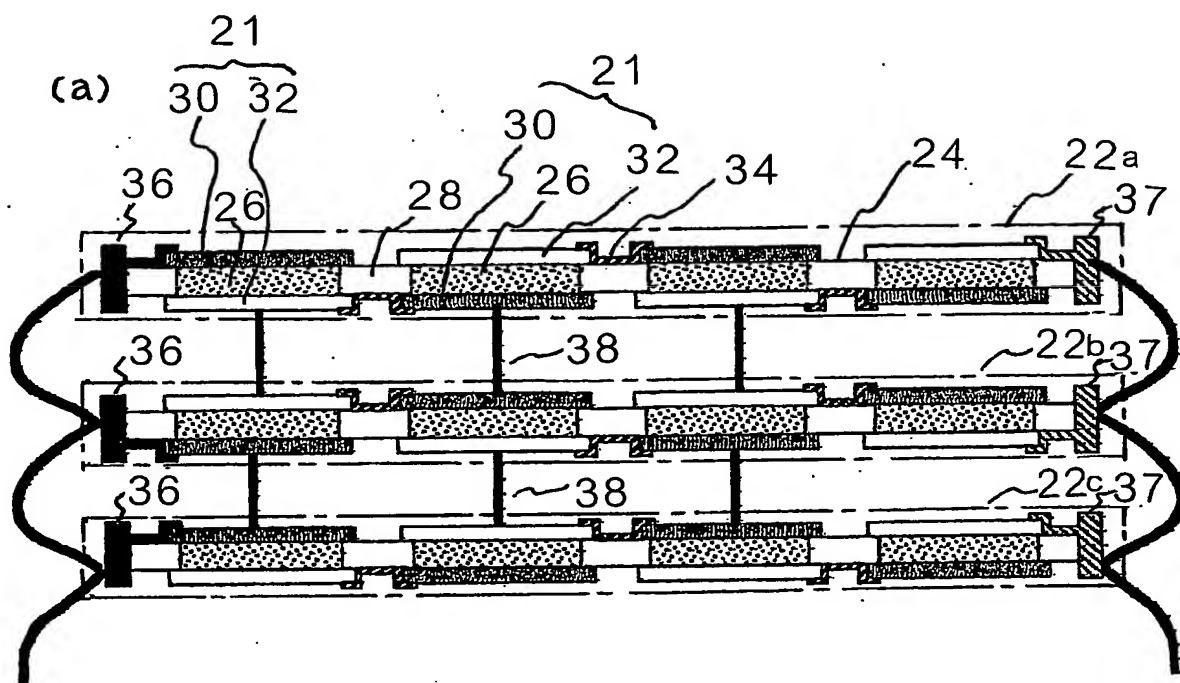


図 8

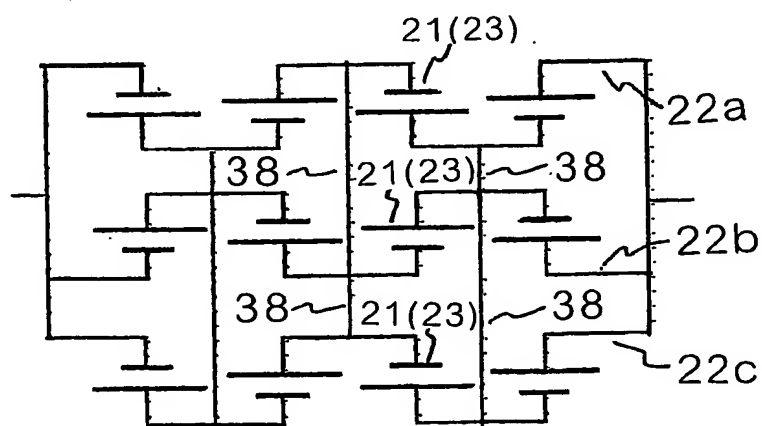


6 / 7

図 9



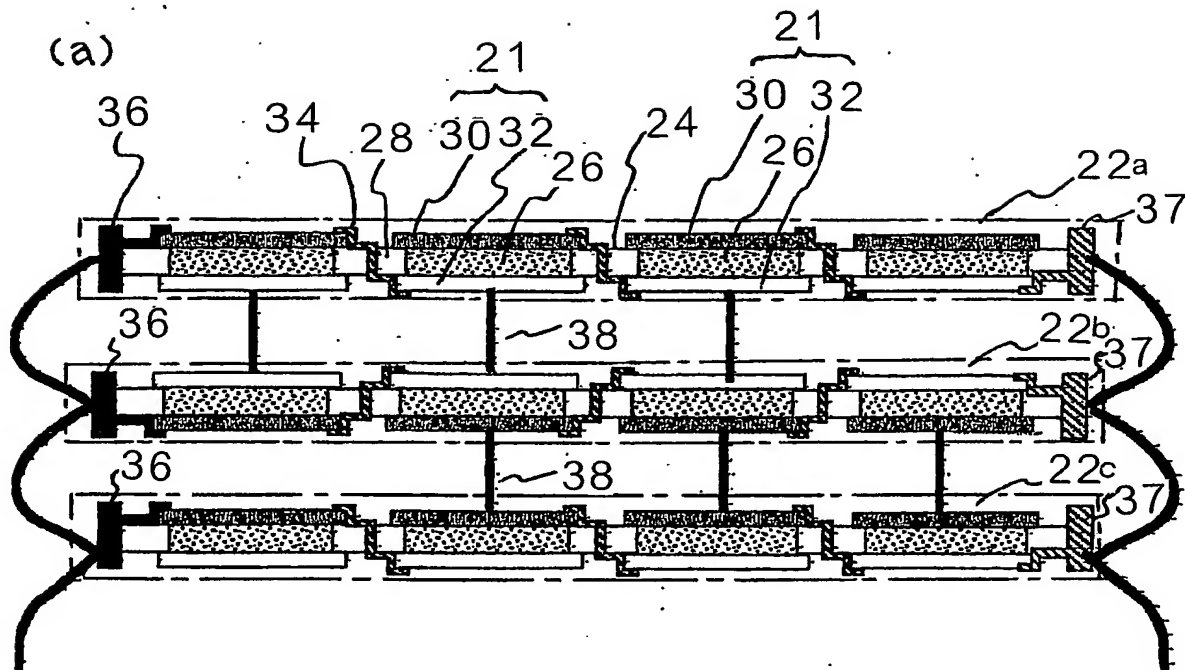
(b)



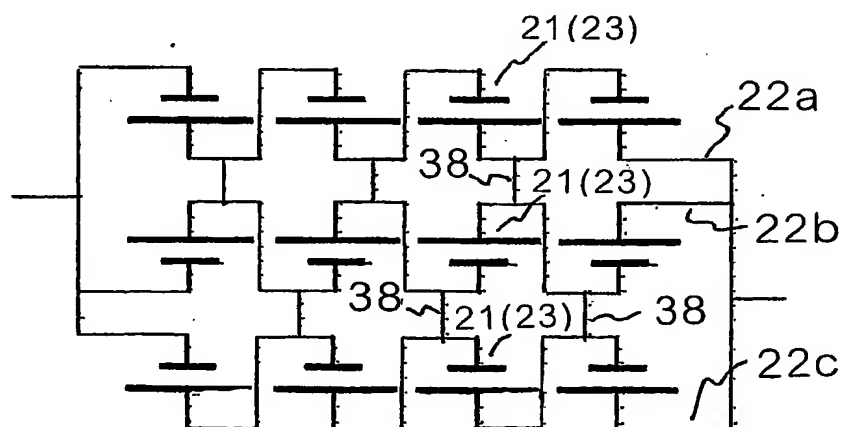
BEST AVAILABLE COPY

7 / 7

図 10



(b)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07622

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01M8/04, H01M8/10, H01M8/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/04, H01M8/10, H01M8/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 97/21256 A1 (CALIFORNIA INSTITUTE OF TECHNOLOGY), 12 June, 1997 (12.06.97), Whole document; Figure 1 to 12 & JP 11-510311 A & JP 2002-110177 A & JP 2002-110197 A & JP 2002-110199 A & JP 2002-117863 A & JP 2002-117864 A	1, 4-7, 2-3
Y	EP 1134830 A2 (SAMSUNG ELECTRONICS CO., LTD.), 19 September, 2001 (19.09.01), Whole document; Figs. 1 to 13 & JP 2001-283892 A & US 2002/0076597 A1	1, 4-7, 2-3
Y	WO 02/07242 A2 (THE JOHNS HOPKINS UNIVERSITY), 24 January, 2002 (24.01.02), Whole document; Figs. 1 to 10 (Family: none)	1, 4-7, 2-3

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 16 September, 2003 (16.09.03)	Date of mailing of the international search report 30 September, 2003 (30.09.03)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07622

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-151134 A (Sony Corp.), 24 May, 2002 (24.05.02), Full text; Figs. 1 to 9 (Family: none)	1, 4-7, 2-3
Y	EP 0982788 A2 (GENERAL MOTORS CORP.), 01 March, 2000 (01.03.00), Claims; drawings & JP 2000-67896 A	1, 4-7, 3
Y	EP 1069636 A2 (General Motors Corp.), 17 January, 2001 (17.01.01), Whole document; Figs. 1 to 5 & JP 2001-43880 A & US 2002/0051899 A1	1, 4-7, 3
Y	JP 2002-8702 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 11 January, 2002 (11.01.02), Full text; Figs. 1 to 2 (Family: none)	1, 4-7, 3
Y	JP 64-76682 A (Mitsubishi Electric Corp.), 22 March, 1989 (22.03.89), Full text; Figs. 1 to 2 (Family: none)	2-3
A	JP 2000-268836 A (Sony Corp.), 29 September, 2000 (29.09.00), (Family: none)	1, 4-7
P, A	DE 10161234 A1 (Plug Power, L.L.C.), 11 July, 2002 (11.07.02), & US 2002/0081466 A1 & JP 2002-289240 A	1, 4-7
A	EP 0055016 A1 (WESTINGHOUSE ELECTRIC CORP.), 30 June, 1982 (30.06.82), & JP 57-130381 A & US 4490444 A	2-3
A	DE 10042210 A1 (SOFCo), 29 March, 2001 (29.03.01), & JP 2001-85041 A & US 6368739 B1	2-3

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/07622

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

There must exist a special technical feature so linking a group of inventions of claims as to form a single general inventive concept in order that the group of inventions may satisfy the requirement of unity of invention. As described on (extra sheet), the claims of this international application define two inventions: the invention of claims 1, 4-7, and the invention of claims 2, 3.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box No. II of continuation of first sheet (1)

There must exist a special technical feature so linking a group of inventions of claims as to form a single general inventive concept in order that the group of inventions may satisfy the requirement of unity of invention. However, the group of inventions of claims 1-7 are linked only by the technical feature "a liquid fuel-fuel cell comprising a cell stack where unit cells are stacked, each of which has a structure in which a negative electrode and a positive electrode are opposed with a polymer electrolyte having a proton conductivity interposed between them, a liquid fuel is supplied to the negative electrode, and air is supplied to the positive electrode.

However, this technical feature is a well-known one and cannot be a special technical feature as mentioned in "Prior Art" of the description of the application. Therefore, the group of inventions of claims 1-7 do not involve any special technical feature so linking the inventions as to form a single general inventive concept.

Consequently, it appears that the group of inventions of claims 1-7 do not satisfy the requirement of unity of invention.

Next, the number of inventions of the claims in the international application so linked as to form a single general inventive concept, namely, the number of inventions will be examined.

Judging from the specific modes of the inventions of the independent claims, the claims of the international application define four inventions: the invention of claim 1, the invention of claims 2, 3, the invention of claims 4, 5, and the invention of claims 6, 7. The inventions of claims 1, 4, 6 are linked by the technical feature of claim 1. There are no other technical features linking inventions.

Consequently, the international application contains two inventions: the invention of 1, 4-7 and the invention of 2, 3.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M 8/04, H01M 8/10, H01M 8/24

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M 8/04, H01M 8/10, H01M 8/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO 97/21256 A1 (CALIFORNIA INSTITUTE OF TECHNOLOGY) 1997. 06. 12, Whole Document, FIGURE 1-12 & JP 11-510311 A & JP 2002-110177 A & JP 2002-110197 A & JP 2002-110199 A & JP 2002-117863 A & JP 2002-117864 A	1, 4~7, 2~3
Y	EP 1134830 A2 (SAMSUNG ELECTRONICS CO., LTD.) 2001. 09. 19, Whole Document, FIG. 1-13 & JP 2001-283892 A & US 2002/0076597 A1	1, 4~7, 2~3
Y	WO 02/07242 A2 (THE JOHNS HOPKINS UNIVERSITY) 2002. 01. 24, Whole Document, FIG. 1-10 (Family:none)	1, 4~7, 2~3

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16. 09. 03

国際調査報告の発送日

30.09.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進



4X

8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2002-151134 A(ソニー株式会社)2002.05.24, 全文、及び、 【図1】～【図9】 (ファミリーなし)	1, 4～7, 2～3
Y	EP 0982788 A2(GENERAL MOTORS CORPORATION)2000.03.01, Claims, Drawing & JP 2000-67896 A	1, 4～7, 3
Y	EP 1069636 A2(General Motors Corporation)2001.01.17, Whole Document, FIG. 1-5 & JP 2001-43880 A & US 2002/0051899 A1	1, 4～7, 3
Y	JP 2002-8702 A(出光興産株式会社)2002.01.11, 全文、及び、 【図1】～【図2】 (ファミリーなし)	1, 4～7, 3
Y	JP 64-76682 A(三菱電機株式会社)1989.03.22, 全文、及び、第1 ～2図 (ファミリーなし)	2～3
A	JP 2000-268836 A(ソニー株式会社)2000.09.29(ファミリーなし)	1, 4～7
P, A	DE 10161234 A1(Plug Power, L. L. C.)2002.07.11 & US 2002/00814 66 A1 & JP 2002-289240 A	1, 4～7
A	EP 0055016 A1(WESTINGHOUSE ELECTRIC CORPORATION)1982.06.30 & JP 57-130381 A & US 4490444 A	2～3
A	DE 10042210 A1(SOFCo)2001.03.29 & JP 2001-85041 A & US 6368 739 B1	2～3

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、(特別ページ)に記載したように、この国際出願の請求の範囲には、1と4～7、2～3に区分される2個の発明が記載されていると認めた。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1～7に記載されている一群の発明は、「プロトン導電性を有する高分子電解質からなる電解質を介して負極と正極とを向かい合うように設け、前記負極に液体燃料を、前記正極に酸化剤ガスを供給する構成を設けた単セルが複数個積層されたセルスタックを有する液体燃料形燃料電池」という事項でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は周知の技術事項であり、特別な技術的特徴とはなり得ないことは、本願明細書の「従来の技術」の項の記載からしても明らかである。そうすると、請求の範囲1～7に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存しないこととなる。

よって、請求の範囲1～7に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たしていないことは明らかである。

次に、この国際出願の請求の範囲に記載されている、一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数、すなわち、発明の数につき検討する。

独立請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲には、1, 2～3, 4～5, 6～7に区分される4個の発明が記載されているところ、請求の範囲1と4と6とに記載された発明は、請求の範囲1の記載事項自体で連関していると認める。また、他に複数の発明を連関させている事項は見出し得ない。

そうすると、この国際出願の請求の範囲には、1と4～7, 2～3に区分される2個の発明が記載されていると認める。